

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2003年11月27日 (27.11.2003)

PCT

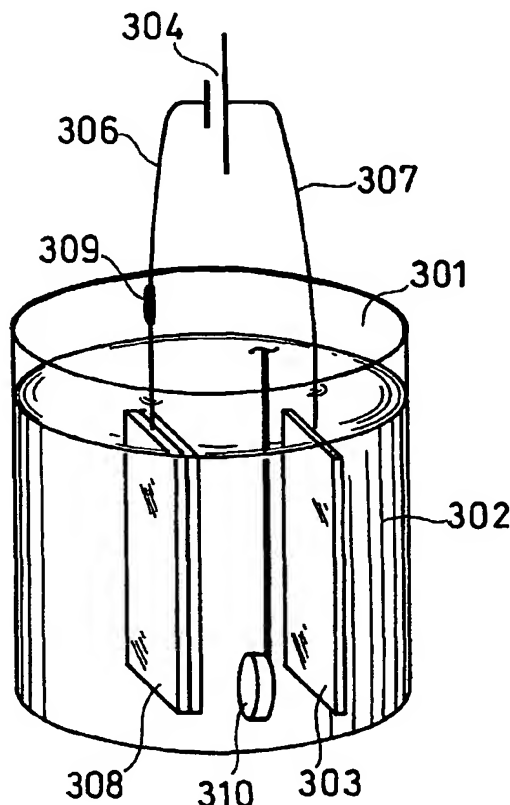
(10) 国際公開番号  
WO 03/097317 A1

- (51) 国際特許分類: B29B 17/02, B09B 3/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/05312
- (22) 国際出願日: 2003年4月24日 (24.04.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2002-142146 2002年5月16日 (16.05.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府門真市大字門真1006番地 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 南野 哲郎 (NANNO, Tetsuo) [JP/JP]; 〒581-0013 大阪府八尾市山本町南4-5-24 Osaka (JP). 和泉 陽一 (IZUMI, Yoichi) [JP/JP]; 〒583-0865 大阪府羽曳野市羽曳が丘西1-6-62 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 石井和郎, 外 (ISHII, Kazuo et al.); 〒541-0041 大阪府大阪市中央区北浜2丁目3番6号北浜山本ビル Osaka (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL,

[続葉有]

(54) Title: METHOD AND APPARATUS FOR RELEASING METAL-RESIN JOINT

(54) 発明の名称: 金属-樹脂接合部の剥離方法および剥離装置



(57) Abstract: A method for releasing a metal-resin joint which comprises a step (1) of immersing an article having the metal-resin joint in an alkaline solution together with a counter electrode and a step (2) of applying a voltage between a metal part of the joint and a counter electrode so as for the metal part to have a potential being base against that of a standard hydrogen electrode for a predetermined time.

(57) 要約: (1) 金属-樹脂接合部を有する物体と、対極とを、アルカリ性の液中に浸漬する工程、(2) 前記接合部の金属部分と、前記対極との間に、前記金属部分の電位が標準水素電極に対して卑になるように、一定時間にわたり電圧を印加する工程、からなる金属-樹脂接合部の剥離方法。



TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU,  
ZA, ZM, ZW.

添付公開書類:

— 国際調査報告書

- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 *PCT* ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

### 金属－樹脂接合部の剥離方法および剥離装置

#### 技術分野

本発明は、金属と樹脂との接合部を有する物体を物理的に破損することなく、前記接合部の金属部分から樹脂部分を剥離する方法および装置に関する。

#### 背景技術

近年の技術開発の進展に伴い、強度、機能、安全性、コスト面などから生じる材料に対する要求は、次第に厳しく、かつ、複雑化してきている。このような要求に単一材料で対処するには限界があるため、2種以上の材料からなる複合材料が採用される機会が増加している。なかでも金属と樹脂との接合部を有する複合材料が多用されている。そのような接合材料として、例えば、金属線を樹脂膜で被覆した電線、金属と樹脂とを一体化した電子機器用基板、金属と金属あるいは金属と樹脂とを接着剤で接合した自動車・飛行機用部品などが挙げられる。

このような技術開発の流れから、特開2001-316872号公報では、インサート成形と接着とを両立させた、金属と樹脂との強固な接合部を有する複合材料が提案されている。しかし、このように金属と樹脂との複合化技術が進化する一方で、地球温暖化・ゴミ処理に関する環境問題の観点から、リサイクル技術の確立が強く望まれている。家電リサイクル法が施行されてからは、法的拘束力によるリサイクル技術の促進も図られている。

「混ぜればゴミ、分ければ資源」という標語にもあるように、リサイ

クルの基本は、材料毎の分別である。種々の構成材料からなる製品は、その材料毎に分解・分別しなければ、リサイクルすることができない。なかでも家電製品は、金属－樹脂接合部を有する部品を数多く含んでいることから、これらの部品を材料毎に分別する簡易な方法が強く望まれている。

複合材料の分解・分別方法を大別すると、機械的方法、化学的方法、電気化学的方法の3種に分けられる。例えば電線の場合、電線を適当な長さに切断し、金属線から樹脂膜を剥離するという機械的方法が考案されている。電線のように、金属部分と樹脂部分とが、接着剤などで接合されていない場合には、機械的方法により、金属と樹脂とを分別することは比較的容易である。しかし、金属部分と樹脂部分とが強く接合している場合には、機械的方法で両者を分別することは、基本的に不可能である。

そこで、従来は、金属－樹脂接合部を有する複合材料は焼却し、残った灰分から、有価金属を取り出すという方法が採用されている。しかし、この方法では、多くのエネルギーを必要とし、しかも二酸化炭素やダイオキシンを発生するという問題を生じる。

金属－樹脂接合部を有する複合材料を、液体窒素などで凍結し、樹脂を脆化させ、これに衝撃を与えて、樹脂部分を破壊し、金属部分を取り出す方法も知られている（米国特許第4406411号、米国特許第4043019号、米国特許第4020992号）。しかし、この方法は、液体窒素などを必要とするため、分別に要するコストが高くなる上、原理的には、樹脂を完全に金属から剥離することができない。

別の金属－樹脂接合部の剥離方法として、シュレッダーにより、複合材料を粉砕する方法が知られている。粉砕で得られた粒状物質を、遠心分離したり（米国特許第5948276号）、種々の比重の液体に分散させたり

(米国特許第5616641号) することによって、材料毎に分別することができ。しかし、シュレッダーによる粉碎で、金属と樹脂とを完全に分離することは困難である。

また、特開平6-166769号公報では、金属と樹脂との複合材料を、加熱した後、双ローラーで加圧することにより、金属部分と樹脂とを分離する方法が提案されている。しかし、この方法では、金属と樹脂との分離は可能であるが、加熱および加圧に多くのエネルギーを要する上、金属部分の破壊を伴うものである。

一方、特開平8-327512号公報は、樹脂膜で被覆されたメッキ鋼板から、電気化学的に樹脂膜を剥離する方法を提案している。この方法は、ヨウ素イオンと無水マレイン酸とを含有するメタノール溶液中に、樹脂膜で被覆されたメッキ鋼板を浸漬して、鋼板表面に施されたメッキ層をアノード溶解させるものである。しかし、この方法は、亜鉛などのメッキ層を選択的に溶解する電位に鋼板を保持することで、鋼板と樹脂膜とを分離するものであるため、対象となる金属が亜鉛メッキ鋼板などに限られてしまい、一般性に欠ける。

また、特開平9-187751号公報は、フェノール樹脂製プリント基板を熱アルカリ性の液へ浸漬した後、水へ浸漬することにより、前記プリント基板から、銅箔や半田を除去する方法を提案している。しかし、この方法は、複合材料の樹脂部分がアルカリ性の液に膨潤しやすいフェノール樹脂である場合には有効であるが、他の複合材料には適さない。

以上のように、従来の金属－樹脂接合部の剥離方法には、それぞれ欠点があり、しかも概ね金属－樹脂接合部を有する物体の破壊を伴うものである。

発明の開示

本発明は、金属－樹脂接合部を有する物体の解体・リサイクルにおいて、少ないエネルギー消費で、安価かつ容易に、かつ、少なくとも金属部分を破壊することなく、金属部分から樹脂部分を剥離する方法および装置を提供することを目的とする。

本発明は、（１）金属－樹脂接合部を有する物体と、対極とを、アルカリ性の液中に浸漬する工程、（２）前記接合部の金属部分と、前記対極との間に、前記金属部分の電位が標準水素電極に対して卑になるように、一定時間にわたり電圧を印加する工程、からなる金属－樹脂接合部の剥離方法に関する。

工程（２）では、前記接合部の金属部分の電位が標準水素電極に対して－２Ｖ以上－０．６Ｖ以下になるように、さらには－１．８Ｖ以上－１Ｖ以下になるように電圧を印加することが好ましい。

前記アルカリ性の液は、０．１Ｍ（Ｍ＝モル／リットル）以上１５Ｍ以下の水酸化物イオン濃度を有し、かつ、アルカリ金属カチオンを含むことが好ましい。

前記アルカリ性の液が、３Ｍ以上７Ｍ以下の水酸化物イオン濃度を有し、かつ、アルカリ金属カチオンを含むことが、さらに好ましい。

前記アルカリ性の液の温度は、０℃以上８０℃以下であることが好ましい。

工程（２）においては、前記接合部に対して、超音波振動を加えることが好ましい。

工程（２）においては、また、前記接合部に対して、剥離応力を加えることが好ましい。

本発明は、前記接合部が、（ｉ）樹脂材料の金属部品上への塗布、（ii）樹脂材料の金属部品上への射出成形、（iii）金属と樹脂材料との加硫接合により形成されている場合などにおいて、特に有効である。

前記接合部の金属部分と樹脂部分とが、接着剤もしくは接合テープにより接合されている場合には、前記接着剤もしくは接合テープは、酢酸ビニル樹脂、アクリル樹脂、合成ゴム、ニトリルゴム、エポキシ樹脂、シアノアクリレート樹脂およびポリ塩化ビニル樹脂よりなる群から選ばれる１種以上からなることが好ましい。

本発明は、また、（１）金属－樹脂接合部を有する廃品を回収する工程、（２）前記接合部と、対極とを、アルカリ性の液中に浸漬する工程、（３）前記接合部の金属部分と、前記対極との間に、前記金属部分の電位が標準水素電極に対して卑になるように、一定時間にわたり電圧を印加することにより、前記金属部分から樹脂部分を剥離する工程、（４）剥離された樹脂部分と、樹脂部分が除かれた前記廃品とを、分別する工程、を有する廃品のリサイクル方法に関する。

本発明は、また、（a）金属－樹脂接合部を有する物体を収納するための耐アルカリ性材料からなる収納部、（b）前記収納部に含まれるアルカリ性の液、（c）前記アルカリ性の液中に浸漬された対極、（d）電源、（e）前記電源の一方の端子と、金属－樹脂接合部を有する物体の前記接合部の金属部分とを、電氣的に接続する接続手段A、ならびに（f）前記電源の他方の端子と、前記対極とを、電氣的に接続する接続手段B、からなる金属－樹脂接合部の剥離装置に関する。

前記電源には、１．２V以上３．０V以下の電圧を発生可能な電源を用いることが好ましい。

前記接続手段Aは、導電性材料からなり、前記導電性材料の一部は、絶縁酸化物層により被覆されていることが好ましい。

前記導電性材料は、Fe、Ni、Cu、Ag、AuおよびZnよりなる群から選ばれる１種以上からなることが好ましい。

前記絶縁酸化物層の比抵抗は、 $10^6 \Omega \cdot \text{cm}$ 以上であることが好ま

しい。

前記絶縁酸化物層は、S i、B、M g、N a、K、A l、C a、B a、T i、Y、C r、N iおよびZ rよりなる群から選ばれる1種以上を含むことが好ましい。

前記絶縁酸化物層は、絶縁樹脂層で被覆されていることが好ましい。

前記絶縁樹脂層は、ポリオレフィン、ポリエーテル、ポリアセタールおよびポリカーボネートよりなる群から選ばれる1種以上からなることが好ましい。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明の剥離装置の一例の模式図である。

図2は、金属－樹脂接合部を有する物体の保持手段の一例を示す図である。

図3は、本発明の実施例1における剥離装置の模式図である。

図4は、本発明の実施例3における試料の一つの平面図である。

図5は、図4のI－I線断面図である。

図6は、本発明の実施例3における剥離装置の一つの模式図である。

図7は、本発明の実施例4におけるワニスで被覆したワイヤーからなる試料の斜視図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

本発明によれば、強固な金属－樹脂接合部を有する物体を、アルカリ性の液に浸漬し、接合部の金属部分に卑電位を印加することで、金属－樹脂接合部界面を容易に剥離することができる。

アルカリ性の液に溶解するアルカリとしては、原理的には、水中で電離して水酸化物イオンを生成するものである限り適用可能であるが、溶



解度やコストを考えると、一般的に広く用いられている水酸化ナトリウムや水酸化カリウムを用いることが好ましい。また、金属－樹脂接合部の剥離に要する時間は比較的長くなるが、炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどの炭酸塩も使用が可能である。

本発明の原理を以下に説明する。

アルカリ性の液中で卑に帯電した金属表面では、電気毛管現象により、アルカリ性の液の表面張力は低下する。表面張力が低下したアルカリ性の液は、金属－樹脂接合部界面へ浸入する傾向が強い。また、卑に帯電した金属表面において、アルカリ性の液／酸素／金属の3相界面が形成されると、酸素の還元反応により、金属表面近傍のアルカリ濃度が上昇し、濃度勾配が生じる。その結果、アルカリ性の液の金属－樹脂接合部界面への輸送が促進される。そして、金属と樹脂との親和性よりも、金属とアルカリ性の液との親和性の方が高いため、金属－樹脂接合部界面には、次々とアルカリ性の液が侵入し、それに伴って界面の剥離が進行していく。本発明の剥離方法は、このような現象を利用している。

金属－樹脂接合部の金属部分に印加する電位は、電気毛管現象により、アルカリ性の液の表面張力が十分に低下する範囲である必要がある。かかる観点から、金属部分に印加する電位は、標準水素電極に対して、 $-2\text{ V}$ 以上 $-0.6\text{ V}$ 以下であることが望ましい。金属部分の標準水素電極に対する電位が $-0.6\text{ V}$ よりも貴になると、電気毛管現象によるアルカリ性の液の表面張力の低下が小さくなり、金属－樹脂接合部の剥離速度が遅くなる傾向がある。一方、金属部分の標準水素電極に対する電位が $-2\text{ V}$ よりも卑になると、金属表面での水素ガス発生が顕著になるため、スケールの大きな工程では、本発明の実施が制限される可能性がある。また、水素ガス発生が激しいと、対極との間に大電流が流れるため、エネルギーの消費量も多くなる。金属－樹脂接合部の金属部分に

印加する電位は、さらに好ましくは、標準水素電極に対して、 $-1.8$  V以上 $-1$  V以下である。

本発明では、水の電気分解で幾分のエネルギーが消費される。また、アルカリ性の液／酸素／金属の3相界面で酸素の還元反応が起こるため、一定の電流は流れる。しかしながら、基本的には金属部分と対極との間に電流を流す必要はない。また、本発明の剥離方法は、室温で実施可能であり、温度を特に制御する必要はない。以上のことから、本発明の剥離方法は、極めてエネルギーのロスが少ないという特徴を有する。本発明の剥離方法と、金属－樹脂接合部を有する廃品を回収する工程とを組み合わせることで、低コストで簡易な廃品のリサイクル方法確立することができる。

アルカリ性の液の水酸化物イオン濃度は、 $0.1$  M以上 $15$  M以下 ( $M: \text{mol/L}$ ) の範囲であることが望ましい。水酸化物イオン濃度が $0.1$  M未満では、アルカリ性の液の表面張力の低下が小さくなり、金属－樹脂接合部の剥離速度が遅くなる。また、水酸化物イオン濃度が $15$  Mをこえると、アルカリ性の液の粘度が高くなり、金属－樹脂接合部界面への侵入が遅くなり、剥離速度も遅くなる。アルカリ性の液の水酸化物イオン濃度は、 $3$  M以上 $7$  M以下の範囲であることが、さらに好ましい。

本発明では、必ずしも金属－樹脂接合部を有する物体全体を、アルカリ性の液に浸漬させる必要はない。金属－樹脂接合部界面の少なくとも一部がアルカリ性の液と接触していれば、アルカリ性の液の這い上がりにより、アルカリ性の液が接合部界面の全体に広がり、金属－樹脂接合部界面の剥離に至る。この場合、アルカリ性の液の温度を上昇させる ( $80^{\circ}\text{C}$  以下が好ましい) と、アルカリ性の液の粘度が低下し、速やかに金属－樹脂接合部を剥離することが可能となる。

金属－樹脂接合部の剥離を促進するためには、アルカリ性の液の温度を上げる他、接合部に超音波振動を与えたり、金属－樹脂接合部に応力を与えながら接合部の金属部分に電位を印加することが有効である。

本発明の剥離方法は、金属－樹脂接合部の金属部分に、還元方向の電位を印加するので、幅広い金属材料に適用可能である。例えば、金属部分が単体金属からなる場合に加え、ステンレス鋼、真鍮などの合金からなる場合にも、本発明の剥離方法が有効である。ただし、金属－樹脂接合部の金属部分が、マグネシウムのように、極端にアルカリ性の液により腐食されやすい金属からなる場合には、金属の一部がアルカリ性の液に溶解する場合もある。金属部分が、亜鉛などのように、アルカリ性の液により腐食を受けるものの、水素発生過電圧が十分に高い金属からなる場合であれば、腐食速度が非常に遅いので、本発明の剥離方法を好ましく適用することができる。

本発明の剥離方法は、金属－樹脂接合部の金属部分が、例えばAl、Ti、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Mo、Rh、Pd、Ag、Sn、Re、Os、Ir、Pt、Au、HgおよびPbよりなる群から選ばれる1種以上からなる場合に有効である。

本発明の剥離方法は、また、金属－樹脂接合部の樹脂部分が、例えばポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリアリーレンエーテル、ポリアリーレンスルフィド、ポリサルホン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、含フッ素ポリマー、天然ゴム、フェノール樹脂、ポリウレタン、シリコーン樹脂およびエポキシ樹脂よりなる群から選ばれる1種以上からなる場合に有効である。本発明の剥離方法は、樹脂部分もリサイクルする必要がある、樹脂部分が耐アルカリ性を有する場合に特に適している。

本発明の剥離方法が適用可能な接合部を以下に例示する。

- (i) 接着剤を用いた金属材料と樹脂材料との接合部
- (ii) 両面テープなどを用いた金属材料と樹脂材料との接合部
- (iii) 樹脂材料への金属の無電解メッキにより形成される金属と樹脂との接合部
- (iv) 金属材料への樹脂材料の塗布により形成される金属と樹脂との接合部
- (v) 金属部品上への樹脂材料の射出成形により形成される金属と樹脂との接合部
- (vi) 接着剤や粘着テープからなるプライマーや有機メッキなどにより変性させた金属表面と樹脂材料との接合部
- (vii) プライマーや有機メッキなどにより変性させた金属表面への樹脂材料の射出成形により形成される金属と樹脂との接合部

本発明の剥離方法は、スナップフィット、樹脂の熱かしめ、ネジ止めなどにより、物理的に金属と樹脂とが接合されている場合には、原理的に不適である。ただし、このような場合にも、例えば従来から用いられている機械的な粉碎と、本発明の剥離方法とを組み合わせることで、樹脂と金属との完全な分別を達成することが可能である。

次に、金属－樹脂接合部の剥離装置の一例について、図1を参照しながら説明する。

図1の装置は、金属－樹脂接合部を有する物体を収納するための耐アルカリ性材料からなる収納部101、収納部101に含まれるアルカリ性の液102、アルカリ性の液102中に浸漬された対極103、電源104、金属－樹脂接合部を有する物体を保持する保持手段105、電源104の一方の端子と金属－樹脂接合部を有する物体の金属部分とを電氣的に接続する接続手段106、ならびに電源104の他方の端子と対極103とを電氣的に接続する接続手段107を有する。

耐アルカリ性材料からなる収納部 101 には、例えばテトラフルオロエチレン製のピーカーなどが好ましく用いられる。

対極 103 は、アルカリ性の液 102 中で、酸化雰囲気に曝されるため、腐食を受けやすい。そのため、対極 103 として使用する電極には、ニッケル材を用いることが望ましい。また、装置の運転中には、金属－樹脂接合部を有する物体からは水素、対極 103 からは酸素が発生するため、アルカリ性の液のミストが発生する。従って、装置には、さらに、排気設備、排気から脱アルカリする設備、水素ガス処理装置等を設けることが望ましい。また、装置の運転中には、水の電気分解により、アルカリ性の液 102 中の水酸化物イオン濃度が変化する。そこで、装置の運転中には、アルカリ性の液 102 の比重や pH をモニタすることにより、アルカリ性の液 102 の濃度を管理することが望ましい。

金属－樹脂接合部を有する物体が十分に大きい場合には、保持手段 105 として、クリップなどの導電性材料からなる挟持手段を用いることができる。この場合、その挟持手段で物体の金属部分を挟持した状態で、物体の金属－樹脂接合部をアルカリ性の液 102 中に浸漬することができる。そして、挟持手段と対極との間に、電圧を印加すればよい。

金属－樹脂接合部を有する物体が小さい場合や、多数の物体を同時に処理する場合には、保持手段 105 として、図 2 に示す金属ネット 201 のように、導電性の有孔材料からなる容器を用いることが好ましい。そして、この容器中に金属－樹脂接合部を有する物体を入れ、容器と対極との間に電圧を印加すればよい。また、容器中の金属－樹脂接合部を有する物体を攪拌棒で攪拌することで、一度に多くの物体を金属と樹脂に分別することができる。

装置には、耐アルカリ性材料からなる収納部 101、アルカリ性の液 102、保持手段 105 などを介して間接的に、または直接的に、金属

一樹脂接合部を有する物体に、熱や超音波振動を付与する手段を設けることが好ましい。例えば、超音波振動子を備えた収納部 101 や保持手段 105 を用いることが有効である。また、金属－樹脂接合部に対して剥離応力を加える手段を設けることも有効である。

なお、装置は、水銀／酸化水銀電極などの参照電極を備える必要はない。金属－樹脂接合部を有する物体に印加される電位は、その物体の金属部分からの水素発生により確認することができる。すなわち、水素発生が確認できれば、金属－樹脂接合部を有する物体に印加した電位が標準水素電極に対して、例えば  $-1.8\text{ V} \sim -1\text{ V}$  の範囲内にあると考えられる。ただし、対極と金属－樹脂接合部を有する物体との間に印加される電圧および通電される電流を、モニターで確認しながら、電位を制御できる装置を用いることが望ましい。

電源 104 には、直流電源を用いることが望ましく、その電源は  $1.2\text{ V}$  以上  $3.0\text{ V}$  以下の電圧を発生可能であることが好ましい。対極と金属－樹脂接合部を有する物体との間に流れる電流値は、装置の大きさ等によっても異なるが、一般の電気メッキなどの設備と比較すると、非常に小さい電流で充分である。

保持手段 105、接続手段 106 ならびに接続手段 107 には、先に述べたように、装置の稼働中にアルカリ性の液がクリープすると考えられる。アルカリ性の液が電源に到達すると、電源を損傷する恐れがある。特に、直流電源の負極端子と金属－樹脂接合部の金属部分とを電氣的に接続する手段において、アルカリ性の液のクリープが顕著である。

このようなアルカリ性の液のクリープを抑制するには、保持手段 105 および接続手段 106 の少なくとも一方の少なくとも一部を、絶縁酸化物層で被覆することが有効である。すなわち、保持手段 105 を構成する導電性材料の少なくとも一部、および／または接続手段 106

を構成する導電性材料の少なくとも一部を、絶縁酸化物層で被覆する。金属と絶縁酸化物層との接合部では、ガラスライニングやホーロー（琺瑯）のように、金属表面の酸化物層が絶縁酸化物層と融合している。このような接合部界面は、アルカリ性の液の侵入を極めて受けにくい。

この絶縁酸化物層上では、電気化学的作用によるアルカリ性の液のクリープ現象が起こらないため、電源がアルカリ性の液の侵入から保護される。ただし、一般的に、ガラスなどの絶縁酸化物は、アルカリ性の液に対する耐性がそれほど強くはない。そこで、絶縁酸化物層を保護するための絶縁樹脂層を、絶縁酸化物層上に、さらに設けることが好ましい。絶縁樹脂層に用いられる樹脂としては、耐アルカリ性に優れるもの、例えばポリエチレン、ポリプロピレンなどのポリオレフィン、ポリスチレン、エポキシ樹脂、ポリエーテル、ポリアセタール、ポリカーボネートなどが好ましい。

以下、実施例に基づいて本発明を具体的に説明する。

## 実施例 1

### (i) 試料 1 の作製

厚さ 0.10 mm、縦 50 mm、横 30 mm の鋼板を準備した。この鋼板の片面に、溶剤に溶解した合成ゴムからなる接着剤（コニシ株式会社製の速乾ボンド G17）を塗布し、その上に縦 50 mm、横 30 mm、厚さ 2 mm のポリメタクリル酸メチルからなるアクリル板を、鋼板と重ね合うように設置した。こうして、鋼板とアクリル板との接合部を有する 5 個の同様の試料 1a、1b・・・1e を得た。

### (ii) 剥離装置の組み立て

まず、テトラフルオロエチレン製の 100 ml ビーカーを 5 個用意し、それぞれに 0.01 M、0.1 M、3 M、7 M または 15 M の水酸化ナ

トリウム水溶液（25℃）を100mlずつ入れた。これらのピーカーをそれぞれ2a、2b、2c、2dおよび2eと称する。各ピーカーには、対極としてのニッケル板（縦50mm、横30mm、厚さ0.5mm）および参照電極としての水銀／酸化水銀電極を浸漬した。対極がアノードとなるように、対極と直流電源の正極端子とを、銅製の導線で接続した。一方、直流電源の負極端子から伸びる銅製の導線の先端には、ステンレス鋼製のクリップを繋いだ。

カソード側導線のクリップから約1cm離れた部位は、長さ5mm、厚さ0.2mmの絶縁酸化物層で覆われており、さらにその上は厚さ0.5mmの絶縁樹脂層で覆われている。ここでは、絶縁酸化物層として、 $\text{SiO}_2$ （30重量%）、 $\text{B}_2\text{O}_3$ （20.5重量%）、 $\text{Na}_2\text{O}$ （15.0重量%）および $\text{CaF}_2$ （12.5重量%）を含むガラスライニングを用い、絶縁樹脂層として、エポキシ樹脂を用いた。

#### （iii）剥離試験

カソード側のクリップで試料1aを挟持し、ピーカー2aに試料1aのほぼ全体を浸漬した。そして、室温下、試料1aをカソード、対極をアノードとして、10mAの電流が流れるように両者間に電圧を印加した。

電流を通電中の装置の様子を図3に示す。

ピーカー301は、0.01Mの水酸化ナトリウム水溶液302でほぼ満たされており、水酸化ナトリウム水溶液302には参照電極（水銀／酸化水銀電極）310が浸漬してある。対極303は、全体が水酸化ナトリウム水溶液302に浸漬しており、対極303と対面するように、試料308も全体が水酸化ナトリウム水溶液302に浸漬している。直流電源304の正極端子は対極303と導線307で接続されており、直流電源304の負極端子は試料308と導線306で接続されている。



また、導線 306 には、絶縁酸化物層と絶縁樹脂層で覆われた被覆部分 309 が設けられている。

電流を流しはじめてから 30 分ごとに、試料 1a の鋼板とアクリル板との接合部における剥離の有無を確認しながら、合計 8 時間試験を続けた。また、電流を流しはじめてから 10 分後の試料 1a の金属部分の標準水素電極に対する電位を、参照電極を用いて測定した電位と水酸化ナトリウム水溶液の pH から求めた。

なお、水銀／酸化水銀電極の標準水素電極に対する電位  $E_0$  は、pH の関数で表される。水銀／酸化水銀電極に対する試料の金属部分の電位を  $E_{obs}$  とするとき、標準水素電極に対する試料の金属部分の電位  $E$  は、 $E = E_0 + E_{obs}$  で求められる。

試料 1a の剥離確認までの時間と、試料 1a の金属部分の標準水素電極に対する電位の測定結果を表 1 に示す。また、試料 1b とピーカー 2b、試料 1c とピーカー 2c・・・を用いたこと以外、上記と同様の操作を行い、試料 1b～1e の剥離確認までの時間と、試料 1b～1e の金属部分の標準水素電極に対する電位を測定した。結果を表 1 に示す。

表 1

試料	金属部分の標準水素電極 に対する電位 (V)	剥離確認までの時間 (h)
1a	-1.65	> 8
1b	-1.35	6
1c	-1.20	5.5
1d	-1.23	4
1e	-1.25	7

表 1 より、試料 1d に最も早く剥離が見られ、以下、1c、1b、1e の順で早く剥離が見られた。試料 1a については、8 時間以内に剥

離が見られなかった。以上より、アルカリ性の液の水酸化物イオン濃度は、0.1 M以上1.5 M以下が適当であり、3～7 M付近が最適であることが明らかになった。

また、試験終了後、各装置の導線306の絶縁酸化物層と絶縁樹脂層で覆われた被覆部分309の近辺を観測したところ、クリップからの距離が1 cm未満の導線部分が所々、黒く変色していた。これは、アルカリ性の液が這い上がった導線部分の空気による酸化が促進され、酸化銅を生成したためと判断できる。一方、ガラスライニングを設けた部分から直流電源の負極端子までの部分には、そのような変色は見られなかった。

## 実施例 2

次に、試料1dの試験装置と同じ装置を4組作製した。そして、室温下、試料と対極との間に通電させる電流値を変化させて、剥離に要する時間の変化を調べた。結果を試料の金属部分の標準水素電極に対する電位とともに表2に示す。

表 2

電流値 (mA)	金属部分の標準水素電極 に対する電位 (V)	剥離確認までの時間 (h)
1	-1.10	6
10	-1.23	4
100	-1.37	3.5
500	-1.61	3.5
800	-1.81	3.5
1000	-1.94	3.5

電流値1 mAでは、試験開始直後は試料の金属部分の表面に水素発生

がかりうじて確認できる程度であったが、試験開始から6時間後にはアクリル板と鋼板との剥離が確認された。電流値を10mA、100mAと増加させるに従い、剥離に要する時間も短縮されたが、500mA以上の電流を通電させても、剥離に要する時間は100mAを通電させたときと変化がなかった。さらに、1000mAの電流を通電させると、気泡の発生が激しく、アルカリ性の液の飛散が起こった。これらの実験結果から、通電させる電流値は、1～800mAが適当であると考えられる。また、そのときの試料の金属部分の標準水素電極に対する電位は、 $-1.8 \sim -1$  V付近である。通電させる電流値は、剥離させる試料の大きさに依存するため、試料の金属部分の電位が標準水素電極に対して $-1.8 \sim -1$  Vになるような電流値を設定することが最適であると考えられる。

以上の結果から、本発明のように、金属－樹脂接合部を有する物体の金属部分と対極間に、金属部分の電位が標準水素電極に対して $-2$  V～ $-0.6$  V、さらに好ましくは $-1.8$  V～ $-1$  Vになるように電位を印加することで、簡単に金属－樹脂部を剥離できることが明らかになった。

### 実施例 3

試料1dの試験装置と同じ装置を5組作製した。そして、ピーカーを種々の温度の湯浴に浸漬して、種々の温度の水酸化ナトリウム水溶液中で、試料の金属－樹脂接合部の剥離試験を行った。金属－樹脂接合部の金属部分と対極との間に通電する電流値は10mAとした。

3つの試料については、それぞれ湯浴温度を25℃、45℃および65℃に設定して、実施例1と同様の剥離試験を行った。

1つの試料については、ピーカーを、25℃の水を満たした超音波洗

浄機（40 kHz、出力200 W）に浸漬して、実施例1と同様の剥離試験を行った。

残りの1つの試料は、以下のように加工した。その平面図を図4に示す。また、図4におけるI－I線断面図を図5に示す。

まず、試料の鋼板401に、同じく鋼板からなる耳部402を溶接した。次いで、アクリル板503の鋼板401との接合部とは反対側の面に、溶剤に溶かした合成ゴムからなる接着剤（コニシ株式会社製の速乾ボンドG17）を塗布し、そこへ約200 gの銅片504を接合した。

次に、試験装置を図6のようにアレンジした。

まず、試料に設けた耳部402を装置のクリップ605で挟み、クリップ605には、約100 gの分銅606を、2つの滑車607、608で支えられた糸で繋いだ。この試料を、図6に示すように、水酸化ナトリウム水溶液302中に浸漬した。また、ビーカー301は、25℃の湯浴に浸漬した。この装置を用いて、分銅606と銅片504にかかる重力により、金属－樹脂接合部に剥離応力を印加した。その間、対極303と鋼板401との間に、10 mAの電流を通電させて実施例1と同様の剥離試験を行った。

各試験での剥離確認までの時間と金属部分の標準水素電極に対する電位の測定結果を表3に示す。

表 3

湯浴温度 (℃)	付帯条件	金属部分の標準水素 電極に対する電位 (V)	剥離確認までの時間 (h)
25	—	−1.23	4
45	—	−1.21	3.5
65	—	−1.16	2.5
25	超音波印加	−1.23	2.5
25	応力印加	−1.25	3

表 3 の結果より、湯浴温度の上昇とともに、金属－樹脂接合部の剥離に要する時間の短縮が確認された。また、温度上昇と同様の剥離を促進する効果が、金属－樹脂接合部への超音波振動の印加または剥離応力の印加により得られることが明らかとなった。

#### 実施例 4

アルミニウム、チタン、クロム、マンガン、鉄、コバルト、ニッケル、銅、亜鉛、モリブデン、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金、錫、鉛および水銀アマルガム（虫歯治療用、Ag：35重量%、Sn：15重量%、Hg：50重量%）よりなるワイヤー（直径0.5mm、長さ50mm）を用意した。

図 7 に示すように、ワイヤー 701 の表面に、長さ 40mm にわたってチューブ用ワニス 702 を塗布した。ここで、ワニスには、ポリエステル樹脂をスチレンで希釈したものを用いた。このとき、ワイヤーの上端部 10mm と底部断面は、金属が剥き出しになるようにした。

ワニスで被覆したワイヤーを試料に用いたこと以外、実施例 1 と同様の装置を用いて、実施例 1 とほぼ同様の剥離試験を行った。ここでは、ワニスで被覆したワイヤーとニッケル板とを、それぞれ 50ml の水酸

化ナトリウム水溶液（6 M）を入れたテトラフルオロエチレン製の  
100 ml ビーカーに浸漬した。ワイヤー上端部とニッケル板との間には、ワイヤーがカソードとなるように2 mAの電流を通電した。そして、ワイヤーの標準水素電極に対する電位と、ワイヤーからワニスが剥離するのに要した時間とを求めた。結果を表4に示す。

表 4

金属ワイヤ	金属部分の標準水素電極 に対する電位 (V)	剥離確認までの時間 (h)
アルミニウム	-1.57	<0.5
チタン	-1.38	2
クロム	-1.32	2
マンガン	-1.32	2
鉄	-1.33	1.5
コバルト	-1.33	1.5
ニッケル	-1.32	1.5
銅	-1.32	2
亜鉛	-1.38	1.5
モリブデン	-1.35	2
ロジウム	-1.31	2.5
パラジウム	-1.31	2.5
銀	-1.38	2
レニウム	-1.31	2
オスミウム	-1.31	2.5
イリジウム	-1.31	2
白金	-1.31	2
金	-1.32	1.5
錫	-1.37	1.5
鉛	-1.40	1.5
アマルガム	-1.41	2.5

いずれの金属ワイヤーからも、試験開始後1.5時間から2.5時間

の間にワニスの剥離・脱落が確認された。また、アルミニウムを除くすべての金属の表面の、酸化や溶出は確認されず、基本的にはワニスで被覆する前と比較して変化が見られなかった。アルミニウムからなるワイヤーのみ、アルミニウムの溶解が確認された。

#### 実施例 5

アクリル板の代わりにポリ塩化ビニル製の板を用い、溶剤に溶解した合成ゴムからなる接着剤（コニシ株式会社製の速乾ボンドG 17）の代わりに表5に示した種々の接着剤を用いて試料を作製したこと以外、実施例1の試料1dの試験装置と同じ装置を組み立てた。そして、実施例1と同様に、対極と鋼板との間に、対極がアノードとなるようにして10mAの電流を通電して、金属－樹脂接合部の剥離試験を行った。接着剤種とその主成分、試料の金属部分の標準水素電極に対する電位および剥離に要した時間を表5に示す。

表 5

接着剤	接着剤の主成分	金属部分の標準 水素電極に対する 電位 (V)	剥離確認 までの時間 (h)
コニシ (株) 製 木工用ボンド	ポリ酢酸ビニル エマルジョン	-1.21	1
コニシ (株) 製 速乾ボンド G17	合成ゴム	-1.23	3.5
コニシ (株) 製 G103	ニトリルゴム	-1.22	1.5
チバガイギ-社製 アラダイト	エポキシ樹脂	-1.24	3
コニシ (株) 製 アロンアルファ-	ポリシアノアクリレート	-1.25	3.5
セメンタイン社製 ス-パ-X エクセルシグマ (ビニール用)	ポリ塩化ビニル	-1.24	4

いずれの接着剤を用いた場合も、試験開始後 4 時間以内に、金属と接着剤との界面での剥離が確認された。

#### 実施例 6

次に、以下に示す種々の金属-樹脂接合部を有する物体について、剥離試験を行った。

##### (i) 試料 A

溶剤に溶解した合成ゴムからなる接着剤（コニシ株式会社製の速乾ボンド G 1 7）の代わりに、アクリル系両面テープ（住友スリーエム株式



会社製の工業用テープ Y-4950) を用いたこと以外、実施例 1 と同様の試料 A を作製した。

(ii) 廃車となった自動車のドアから、縦 50 mm、横 30 mm の長方形に、エポキシ樹脂が塗装された亜鉛メッキ鋼板を切り出した。切り出した板の一部を金属やすりで削って、金属面を剥離させて、試料 B とした。

(iii) 特開 2001-316872 号公報に開示されている技術を用いて、縦 50 mm、横 30 mm、厚さ 1.5 mm の真鍮の片面に、トリアジンチオール重合体を付与した。さらにこのトリアジンチオール重合体表面に、ポリフェニレンスルフィドを射出成形して、真鍮とポリフェニレンスルフィドとの複合試料 C を作製した。

(iv) 紙フェノール（フェノール樹脂を含浸させたクラフト紙）からなり、片面に銅箔パターンが形成されたプリント基板を、縦 50 mm、横 30 mm に切断し、試料 D とした。

試料 A～D を用いたこと以外、実施例 1 と同様に、対極と鋼板との間に、対極がアノードとなるようにして 10 mA の電流を通電して、金属－樹脂接合部の剥離試験を行った。このとき試料 A～D および対極ともに、ほぼ全体が水酸化ナトリウム水溶液に浸漬されていた。試料の構成材料、試料の金属部分の標準水素電極に対する電位および剥離に要した時間を表 6 に示す。

表 6

試料	金属	樹脂	金属部分の標準 水素電極に対する 電位 (V)	剥離確認まで の時間 (h)
A	鋼	アクリル樹脂材料	-1.24	3
B	亜鉛メッキ鋼	変性エポキシ樹脂	-1.56	5
C	真鍮	トリアジンチオール重合体	-1.23	4.5
D	銅	フェノール樹脂	-1.42	2

結果的には試料 A～D の全てにおいて、金属部分と樹脂部分との剥離が認められた。また、剥離は金属と樹脂との接合界面から起こっていた。試料 B は、樹脂部分が非常に薄いため、試料と対極との間に通電している間に金属部分から樹脂部分が脱離しながら剥離しているのが確認され、結果として樹脂部分は細かい破片となった。

以上の結果より、本発明によれば種々の金属－樹脂接合部を有する物体の金属－樹脂接合部を、容易に剥離・分別できることが示された。

#### 産業上の利用の可能性

本発明によれば、金属－樹脂接合部を有する物体において、前記接合部を、大量のエネルギーを必要とせず、安価で容易に剥離することが可能である。これにより、金属－樹脂接合部を有する物体を容易に材料毎に分別できるようになり、材料のリサイクルが容易となる。

## 請 求 の 範 囲

1. (1) 金属-樹脂接合部を有する物体と、対極とを、アルカリ性の液中に浸漬する工程、

(2) 前記接合部の金属部分と、前記対極との間に、前記金属部分の電位が標準水素電極に対して卑になるように、一定時間にわたり電圧を印加する工程、からなる金属-樹脂接合部の剥離方法。

2. 前記接合部の金属部分と、前記対極との間に、前記金属部分の電位が標準水素電極に対して $-2\text{ V}$ 以上 $-0.6\text{ V}$ 以下になるように、一定時間にわたり電圧を印加する請求項1記載の金属-樹脂接合部の剥離方法。

3. 前記アルカリ性の液が、 $0.1\text{ M}$ 以上 $1.5\text{ M}$ 以下の水酸化物イオン濃度を有し、かつ、アルカリ金属カチオンを含む請求項1記載の金属-樹脂接合部の剥離方法。

4. 前記アルカリ性の液が、 $3\text{ M}$ 以上 $7\text{ M}$ 以下の水酸化物イオン濃度を有し、かつ、アルカリ金属カチオンを含む請求の範囲第1項記載の金属-樹脂接合部の剥離方法。

5. 前記アルカリ性の液の温度が $0^{\circ}\text{C}$ 以上 $80^{\circ}\text{C}$ 以下である請求の範囲第1項記載の金属-樹脂接合部の剥離方法。

6. 工程(2)において、前記接合部に対して、超音波振動を加える請求の範囲第1項記載の金属-樹脂接合部の剥離方法。

7. 工程(2)において、前記接合部に対して、剥離応力を加える請求の範囲第1項記載の金属-樹脂接合部の剥離方法。

8. 前記金属部分が、Al、Ti、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Mo、Rh、Pd、Ag、Sn、Re、Os、Ir、Pt、Au、HgおよびPbよりなる群から選ばれる1種以上からなる請求の

範囲第 1 項記載の金属－樹脂接合部の剥離方法。

9. 前記接合部の樹脂部分が、ポリオレフィン、ポリアミド、ポリエステル、ポリアセタール、ポリカーボネート、ポリアリーレンエーテル、ポリアリーレンスルフィド、ポリサルホン、ポリエーテルケトン、ポリイミド、含フッ素ポリマー、天然ゴム、フェノール樹脂、ポリウレタン、シリコーン樹脂およびエポキシ樹脂よりなる群から選ばれる 1 種以上からなる請求の範囲第 1 項記載の金属－樹脂接合部の剥離方法。

10. 前記接合部が、(i) 樹脂材料の金属部品上への塗布、(ii) 樹脂材料の金属部品上への射出成形、または (iii) 金属と樹脂材料との加硫接合により形成されている請求の範囲第 1 項記載の金属－樹脂接合部の剥離方法。

11. 前記接合部の金属部分と樹脂部分とが、接着剤もしくは接合テープにより接合されており、前記接着剤もしくは接合テープが、酢酸ビニル樹脂、アクリル樹脂、合成ゴム、ニトリルゴム、エポキシ樹脂、シアノアクリレート樹脂およびポリ塩化ビニル樹脂よりなる群から選ばれる 1 種以上からなる請求の範囲第 1 項記載の金属－樹脂接合部の剥離方法。

12. (1) 金属－樹脂接合部を有する廃品を回収する工程、

(2) 前記接合部と、対極とを、アルカリ性の液中に浸漬する工程、

(3) 前記接合部の金属部分と、前記対極との間に、前記金属部分の電位が標準水素電極に対して卑になるように、一定時間にわたり電圧を印加することにより、前記金属部分から樹脂部分を剥離する工程、

(4) 剥離された樹脂部分と、樹脂部分が除かれた前記廃品とを、分別する工程、を有する廃品のリサイクル方法。

13. (a) 金属－樹脂接合部を有する物体を収納するための耐アルカリ性材料からなる収納部、

(b) 前記収納部に含まれるアルカリ性の液、

- (c) 前記アルカリ性の液中に浸漬された対極、
  - (d) 電源、
  - (e) 前記電源の一方の端子と、金属－樹脂接合部を有する物体の前記接合部の金属部分とを、電氣的に接続する接続手段A、ならびに
  - (f) 前記電源の他方の端子と、前記対極とを、電氣的に接続する接続手段B、からなる金属－樹脂接合部の剥離装置。
14. 前記接続手段Aが、導電性材料からなり、前記導電性材料の一部が、絶縁酸化物層により被覆されている請求の範囲第13項記載の金属－樹脂接合部の剥離装置。
15. 前記絶縁酸化物層が、絶縁樹脂層で被覆されている請求の範囲第14項記載の金属－樹脂接合部の剥離装置。

FIG. 1

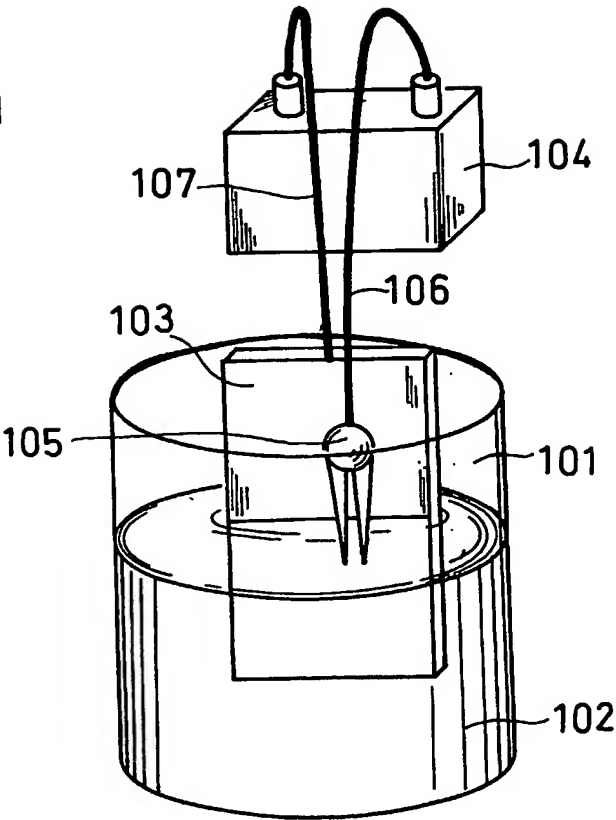
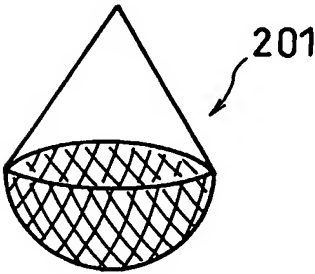


FIG. 2



2/3

FIG. 3

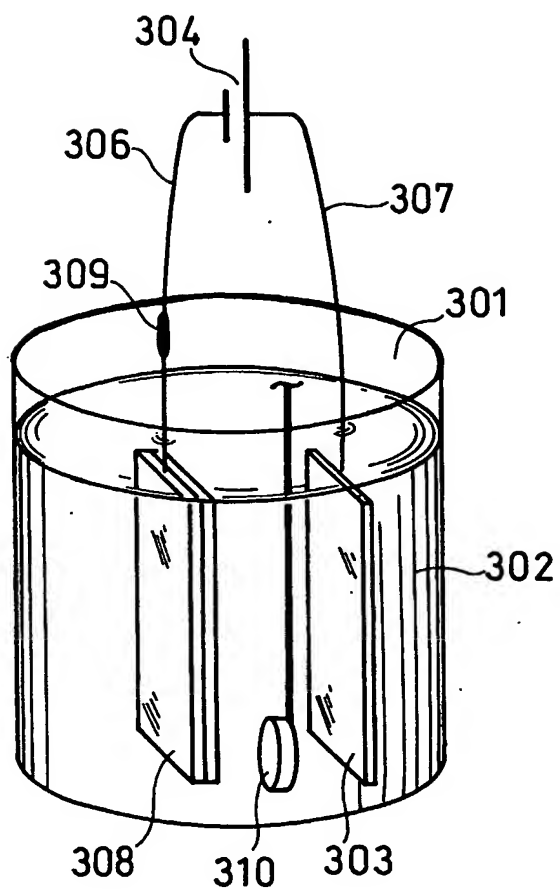


FIG. 4

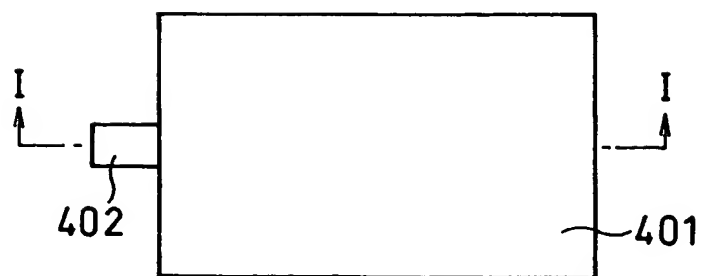


FIG. 5

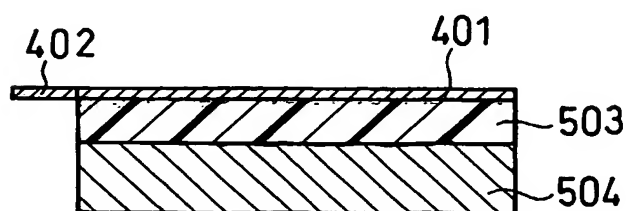


FIG. 6

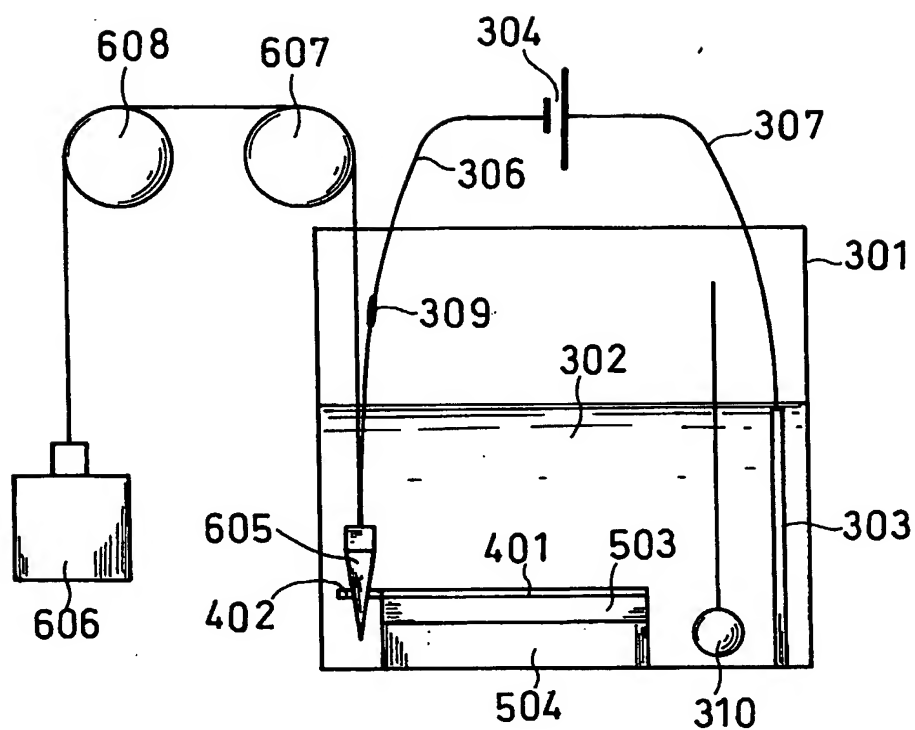
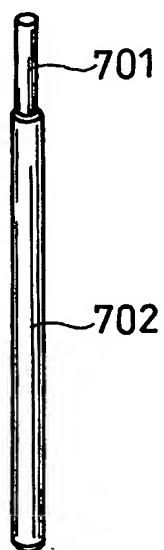


FIG. 7





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/05312

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> B29B17/02, B09B3/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> B29B17/00-02, C08J11/00-28, B09B3/00-5/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2003
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2003	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2001-164400 A (Nihon Hyomen Kagaku Kabushiki Kaisha), 19 June, 2001 (19.06.01), All references (Family: none)	1-15
A	JP 2000-37622 A (Kobe Steel, Ltd.), 08 February, 2000 (08.02.00), All references (Family: none)	1-15
A	JP 9-271748 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 21 October, 1997 (21.10.97), (Family: none)	1-15

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
29 July, 2003 (29.07.03)

Date of mailing of the international search report  
12 August, 2003 (12.08.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B29B17/02, B09B3/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> B29B17/00-02, C08J11/00-28, B09B3/00-5/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926年-1996年
日本国公開実用新案公報	1971年-2003年
日本国登録実用新案公報	1994年-2003年
日本国実用新案登録公報	1996年-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2001-164400 A (日本表面化学株式会社) 2001.06.19, 全文献 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 2000-37622 A (株式会社神戸製鋼所) 2000.02.08, 全文献 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 9-271748 A (松下電器産業株式会社) 1997.10.21 (ファミリーなし)	1-15

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

29.07.03

国際調査報告の発送日

12.08.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

増田 亮子

印

4D

9267

電話番号 03-3581-1101 内線 3421